(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro



### . I DERIK BUNDURAN BURUK BURUK BURUK BERUK BURUK B

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 22. April 2004 (22.04.2004)

**PCT** 

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  $WO\ 2004/034498\ A3$ 

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: H01M 8/10, B01D 67/00, C08J 5/22

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/010903

(22) Internationales Anmeldedatum:

2. Oktober 2003 (02.10.2003)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität: 102 46 372.7 4. Oktober 2002 (04.10.2002) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): PEMEAS GmbH [DE/DE]; 65926 Frankfurt am Main (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BAURMEISTER, Jochen [DE/DE]; Hauptstrasse 67, 65817 Eppstein (DE). KUNDLER, Isabel [DE/DE]; Friedrich-Stolze-Strasse 17, 61462 Königstein (DE). PADBERG, Christoph [DE/DE]; Lahnstrasse 2, 65195 Wiesbaden (DE). UENSAL, Oemer [TR/DE]; Südring 387, 55128 Mainz (DE). KEIFER, Joachim [DE/DE]; Scheidener Strasse 2, 66679 Losheim am See (DE). CALUNDANN, Gordon [US/US]; 1275 Rock Avenue, North Plainfield, NJ 07060

(US). BENICEWICZ, Brian [US/US]; 19 Loudon Heights North, Loudonville, NY 1221 (US). WEBER, Mathias [DE/DE]; Konrad-Adenauer-Ring 54, 65428 Rüsselsheim (DE).

- (74) Anwälte: DÖRR, Klaus usw.; Luderschmidt, Schüler & Partner, Industriepark Höchst, Gebäude F 821, 65926 Frankfurt (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): BR, CA, CN, JP, KR, MX, US.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

#### Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der f\(\text{iir}\) \(\text{Anderungen der Anspr\(\text{uch}\) che geltenden
   Frist; Ver\(\text{off}\) fentlichung wird wiederholt, falls \(\text{Anderungen}\)
   eintreffen
- (88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 12. Mai 2005

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: PROTON-CONDUCTING POLYMER MEMBRANE THAT CONTAINS POLYAZOLES AND IS COATED WITH A CATALYST LAYER, AND APPLICATION THEREOF IN FUEL CELLS

(54) Bezeichnung: MIT EINER KATALYSATORSCHICHT BESCHICHTETE PROTONENLEITENDE POLYMERMEMBRAN ENTHALTEND POLYAZOLE UND DEREN ANWENDUNG IN BRENNSTOFFZELLEN

(57) Abstract: The invention relates to a proton-conducting polymer membrane that contains polyazoles, is coated with a catalyst layer, and is obtained by a method comprising the steps of A) producing a mixture containing polyphosphoric acid, at least one polyazole (polymer A), and/or at least one or several compounds that are suitable for forming polyazoles under the influence of heat according to step B), B) heating the mixture obtained in step A) to temperatures of up to 400 °C under inert gas, C) applying a layer to a support by using the mixture according to step A) and/or B), D) treating the membrane formed in step C) until said membrane is self-supporting, and E) applying at least one coating containing a catalyst to the membrane formed in step C) and/or step D).

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft mit einer Katalysatorschicht beschichtete protonenleitende Polymermembran enthaltend Polyazole erhältlich durch ein Verfahren umfassend die Schritte A) Herstellung einer Mischung umfassend Polyphosphorsäure, mindestens ein Polyazol (Polymer A) und/oder mindestens ein oder mehrere Verbindungen, die unter Einwirkung von Wärme gemäss Schritt B) zur Bildung von Polyazolen geeignet sind, B) Erwärmen der Mischung erhältlich gemäss Schritt A) unter Inertgas auf Temperaturen von bis zu 400°C, C) Aufbringen einer Schicht unter Verwendung der Mischung gemäss Schritt A) und/oder B) auf einem Träger, D) Behandlung der in Schritt C) gebildeten Membran bis diese selbsttragend ist, E) Aufbringen mindestens einer Beschichtung enthaltend einen Katalysator auf die in Schritt C) und/oder in Schritt D) gebildete Membran.



# THIS PAGE BLANK (USPTO)

#### DNAL SEARCH REPORT INTERN

ation No PCT/ET 05/10903

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 H01M8/10 B01D67/00 C08J5/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

#### B. FIELDS SEARCHED

 $\begin{array}{ll} \mbox{Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)} \\ \mbox{IPC 7} & \mbox{H01M} & \mbox{B01D} & \mbox{C08J} \end{array}$ 

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

P,X WO 02/081547 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 17 October 2002 (2002-10-17) 31,32  P,X WO 02/088219 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 7 November 2002 (2002-11-07) 31,32  P,X WO 03/022412 A (CELANESE VENTURES GMBH; 10-25, 31,32  P,X WO 03/022412 A (CELANESE VENTURES GMBH; 1-3, 10-25, UENSAL) 20 March 2003 (2003-03-20) 31,32  page 16, line 15 - line 19; examples	Category •	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 7 November 2002 (2002-11-07) examples 1-16  P,X WO 03/022412 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 20 March 2003 (2003-03-20)  10-25, 31,32	P,X	CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 17 October 2002 (2002-10-17)	10-25,
CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; 10-25, UENSAL) 20 March 2003 (2003-03-20) 31,32	P,X	CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 7 November 2002 (2002-11-07)	10-25,
	P,X	CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 20 March 2003 (2003-03-20)	10-25,

X Further documents are listed in the continuation of box C.	Patent family members are listed in annex.
Special categories of cited documents:  A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  E' earlier document but published on or after the international filling date  L' document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  P' document published prior to the international filling date but later than the priority date claimed	<ul> <li>'T' later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</li> <li>"X' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an Inventive step when the document is taken alone</li> <li>"Y' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.</li> <li>'&amp;' document member of the same patent family</li> </ul>
Date of the actual completion of the international search	Date of malling of the international search report
28 February 2005	23/03/2005
Name and mailing address of the ISA	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016	Koessler, J-L



PCT/EP 03/10903

		TCI/EF US/	
C.(Continu	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Calegory °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages		Relevant to claim No.
P,X	WO 03/007411 A (MUELLER, JOERG; MEX, LAURENT) 23 January 2003 (2003-01-23) examples		1,3, 10-25, 31,32
X	WO 02/38650 A (TOYO BOSEKI KABUSIKI KAISHA; SAKAGUCHI, YOSHIMITSU; KITAMURA, KOTA; TA) 16 May 2002 (2002-05-16)		1-6, 8-25,31, 32
E	abstract -& EP 1 354 907 A (TOYO BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) 22 October 2003 (2003-10-22)		1-6, 8-25,31, 32
	+		



PCT/EP 03/10903

					-, 2. 00, 10300
Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 02081547	A	17-10-2002	DE	10117687 A	1 17-10-2002
020010 17	•••	27 10 2002	BR	0208728 A	20-07-2004
			CA	2443849 A	
			WO		
				02081547 A	
•		•	EP	1379572 A	
			MX	PA03009187 A	17-02-2004
~			US	2004127588 A	1 01-07-2004
WO 02088219	Α	07-11-2002	DE	10117686 A	1 24-10-200
			BR	0208795 A	09-03-2004
			CA	2443541 A	1 07-11-200
			WO	02088219 A	
•			EP	1379573 A	
			ΜX	PA03009184 A	
•			ÜŜ	2004096734 A	
				ZUU4U90734 A	1 20-05-200
WO 03022412	Α	20-03-2003	DE	10144815 A	1 27-03-200
		•	CA	2459775 A	
			WO	03022412 A	
			EP	1427517 A	
WO 03007411	Α	23-01-2003	DE	10133738 A	1 06-02-200
			CA	2448447 A	
			WO	03007411 A	2 23-01-200
			EP	1497882 A	
WO 0238650	A	16-05-2002	JP	2002146012 A	22-05-200
		10 00 2002	JΡ	2002146017 A	
			JP	2002201270 A	
		•			
			JP	2002206025 A	
			JP	2002212291 A	
			JP	2002208416 A	
			EP	1354907 A	
•			WO	0238650 A	
			US	2004062969 A	1 01-04-200
EP 1354907	 А	22-10-2003	JP	2002146012 A	22-05-200
			JP	2002146017 A	
-			ĴΡ	2002201270 A	
•			JP	2002201270 A	
			JP	2002212291 A	
			JP	2002208416	
			EP	1354907 A	
			117	2004062969 A	1 01-04-200
			US WO	0238650	

### THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES 1PK 7 H01M8/10 B01D67/00 C08J5/22

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

#### B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole )  $IPK\ 7\ H01M\ B01D\ C08J$ 

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

P,X	WO 02/081547 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 17. Oktober 2002 (2002-10-17) Beispiele 1-3	1,3, 10-25, 31,32
P,X	WO 02/088219 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 7. November 2002 (2002-11-07) Beispiele 1-16	1-3, 10-25, 31,32
P,X	WO 03/022412 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 20. März 2003 (2003-03-20) Seite 16, Zeile 15 - Zeile 19; Beispiele	1-3, 10-25, 31,32

X Siehe Anhang Patentfamilie
<ul> <li>*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</li> <li>*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden</li> <li>*Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahellegend ist</li> <li>*&amp;* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</li> </ul>
Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
23/03/2005
Bevollmächtigter Bediensteter  Koessler, J-L



Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/10903

		03/10903
C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie®	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Ρ,Χ	WO 03/007411 A (MUELLER, JOERG; MEX, LAURENT) 23. Januar 2003 (2003-01-23) Beispiele	1,3, 10-25, 31,32
X	WO 02/38650 A (TOYO BOSEKI KABUSIKI KAISHA; SAKAGUCHI, YOSHIMITSU; KITAMURA, KOTA; TA) 16. Mai 2002 (2002-05-16)	1-6, 8-25,31, 32
E	Zusammenfassung -& EP 1 354 907 A (TOYO BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) 22. Oktober 2003 (2003-10-22)	1-6, 8-25,31, 32

#### INTERNATIONALER BY ERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, Le zur seiben Patentfamilie gehören

Internation Internation Internation PCT/EP 03/10903

					, , , <u> </u>	<del>55/10505</del>
Im Recherchenbericht Ingeführtes Patentdokumer	nt	Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 02081547		17-10-2002	DE BR CA WO EP MX US	10117687 A 0208728 A 2443849 A 02081547 A 1379572 A PA03009187 A 2004127588 A	\ \1 \1 \1 \1	17-10-2002 20-07-2004 17-10-2002 17-10-2002 14-01-2004 17-02-2004 01-07-2004
WO 02088219	A	07-11-2002	DE BR CA WO EP MX US	10117686 A 0208795 A 2443541 A 02088219 A 1379573 A PA03009184 A 2004096734 A	4 41 41 41 4	24-10-2002 09-03-2004 07-11-2002 07-11-2002 14-01-2004 17-02-2004 20-05-2004
WO 03022412	Α	20-03-2003	DE CA WO EP	10144815 / 2459775 / 03022412 / 1427517 /	41 42	27-03-2003 20-03-2003 20-03-2003 16-06-2004
WO 03007411	A	23-01-2003	DE CA WO EP	10133738 / 2448447 / 03007411 / 1497882 /	A1 A2	06-02-2003 23-01-2003 23-01-2003 19-01-2005
WO 0238650	. А	16-05-2002	JP JP JP JP JP EP WO US	2002146012 / 2002146017 / 2002201270 / 2002206025 / 2002212291 / 2002208416 / 1354907 / 0238650 / 2004062969 /	A A A A A1 A1	22-05-2002 22-05-2002 19-07-2002 26-07-2002 31-07-2002 26-07-2002 22-10-2003 16-05-2002 01-04-2004
EP 1354907		22-10-2003	JP JP JP JP JP EP US WO	2002146012 / 2002146017 / 2002201270 / 2002206025 / 2002212291 / 2002208416 / 1354907 / 2004062969 / 0238650 /	A A A A A1 A1	22-05-2002 22-05-2002 19-07-2002 26-07-2002 31-07-2002 26-07-2002 22-10-2003 01-04-2004 16-05-2002
			<del></del>			

## THIS PAGE BLANK (USPTO)